

PCT

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 558351 の書類記号	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JP00/08195	国際出願日 (日.月.年) 21.11.00	優先日 (日.月.年) 22.11.99	
出願人(氏名又は名称) 住友化学工業株式会社			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。  
☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。  
☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。  
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。  
☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。 ☒ なし  
☐ 出願人は図を示さなかった。  
☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl' B 3 2 B 7/12, C 0 9 J 7/00, 9/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl' B 3 2 B 1/00 - 35/00, C 0 9 J 7/00 - 201/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P, 10-119169, A (株式会社リコー), 12. 5月. 1998 (12. 05. 98), 特許請求の範囲とくに請求項2, 発明の実施の形態とくに【0047】～【0054】, 図面 (ファミリーなし)	1-17 8, 13
X Y	J P, 7-138538, A (ダイセル株式会社), 30. 5月. 1995 (30. 05. 95), 特許請求の範囲, 【0012】～【0022】, 【0032】～ 【0041】, 実施例 (ファミリーなし)	1-17 8, 13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 02. 01

国際調査報告の発送日

13.02.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中 田 とし子

4 F

8017

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

**THIS PAGE BLANK (UPTO)**

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	J P, 5-269906, A (凸版印刷株式会社), 19. 10月. 1993 (19. 10. 93), 特許請求の範囲, 【0010】～【0014】, 【0015】～ 【0016】, 実施例, 図面 (ファミリーなし)	8, 13 1-17
Y A	US, 5609954, A (Nitto Denko Corporation), 11. 3月. 1997 (11. 03. 97), 請求の範囲, 第3欄第35行～第4欄第20行, 実施例 & J P, 5-43851, A, 特許請求の範囲, 【0018】～ 【0021】, 実施例 & E P, 527505, A2 & D E, 69227955, C	8, 13 1-17
A	J P, 8-247629, A (松下冷機株式会社), 27. 9月. 1996 (27. 09. 96), 特許請求の範囲, 実施例, 図面 (ファミリーなし)	1-17

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001 年 5 月 31 日 (31.05.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/38085 A1

- (51) 国際特許分類: B32B 7/12, C09J 7/00, B32B 9/00 (74) 代理人: 神野直美, 外(JINNO, Naoyoshi et al.); 〒541-8550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 住友化学工業株式会社内 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/08195
- (22) 国際出願日: 2000 年 11 月 21 日 (21.11.2000) (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平 11/331122  
1999 年 11 月 22 日 (22.11.1999) JP (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学工業株式会社 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒541-8550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 藤田真人 (FUJITA, Mahito) [JP/JP]; 〒567-0826 大阪府茨木市大池2丁目29-7-B205 Osaka (JP). 内藤茂樹 (NAITOH, Shigeki) [JP/JP]; 〒305-0045 茨城県つくば市梅園 2-24-28 Ibaraki (JP).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: EASILY DELAMINATABLE LAMINATE AND RESIN COMPOSITION FOR USE THEREIN

(54) 発明の名称: 易剥離性積層体およびそれに用いられる樹脂組成物

(57) Abstract: A laminate comprising (A) a substrate, (B) an adhesive which is reduced in adhesiveness upon exposure to a type of energy, to render the laminate to be delaminated with ease, and (C) an adhesive which is not reduced in adhesiveness upon exposure to the type of energy, the three types of materials being laminated in the above order; and a resin composition for use in the laminate comprising an epoxy resin and/or a modified silicone resin and a blowing agent. The laminate exhibits high adhesiveness during use, and after use the substrate can be separated from the laminate with ease through irradiating the laminate with the above type of energy.

(57) 要約:

使用時には高い接着性を有し、エネルギーを積層体に照射した後には基材の剥離が容易である、(A): 基材、(B): エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤および (C): エネルギーを受容しても剥離しない接着剤を順次積層してなる易剥離性積層体、およびこのエポキシ樹脂及び/又は変性シリコーン樹脂ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物を提供する。

WO 01/38085 A1

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## 明細書

### 易剥離性積層体およびそれに用いられる樹脂組成物

#### 技術分野

本発明は、基材と接着剤とからなる積層体に関する。詳しくは、積層体の使用時には高い接着性を有し、基材をリサイクルする際には、該積層体にエネルギーを受容せしめることにより、基材が該積層体から容易に剥離するとともに、得られた基材に接着層がほとんど付着しないことを特徴とする易剥離性に優れた積層体に関する。

本発明はさらに、当該積層体を構成する接着剤の有効成分として用いられる特定の樹脂組成物にも関する。

#### 背景技術

基材と接着剤を積層せしめてなる積層体は、自動車用部品、家電製品、エレクトロニクス製品、事務用品、生活用品等、数多くの物品に使用されている。最近、基材をリサイクル（再利用）するために、基材を積層体から回収する方法が求められている。従来より、基材をリサイクルする際に、熱エネルギーまたは電磁気エネルギーを積層体に受容せしめることにより、接着層の接着力が低減され、基材を容易に剥離、リサイクルし得る積層体が提案されている（特開平5-43851号公報、特開平6-33025号公報、特開平10-119169号公報）。

例えば特開平5-269906号公報には、基材／架橋性ポリマー／発泡剤を含有する架橋性ポリマー（発泡剤とウレタン樹脂とを含有する接着剤）／架橋性ポリマー／基材からなる積層体、ならびに、基材／発泡剤を含有する架橋性ポリマー（発泡剤とウレタン樹脂とを含有する接着剤）／基材からなる積層体が開示され、該積層体にエネルギーを照射することにより、基材を剥離、回収し得ることが報告されている。

しかし、本発明者らがこれらの積層体にエネルギーを照射したところ、基材が積層体から剥離されるものの、剥離した基材には接着層が付着しており、基材をそのまま再利用することは困難であることが明らかになった。

このような状況下、本発明者らは、積層体の使用時には接着剤が基材と強い接着力を有し、該基材をリサイクルする際には、該基材に接着層が付着しない積層体を見出すべく、基材と接着剤とからなる積層体について鋭意検討した結果、エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤に加え、さらに、エネルギーを受容しても剥離しない接着剤を順次積層することにより、積層体の使用時には接着剤が基材と強い接着力を有し、一方、基材をリサイクルする際には、エネルギーを積層体に照射することにより基材を積層体から容易に剥離させることができ、基材に接着層がほとんど付着しない、あるいは接着層が付着していても基材から容易に剥離し得ることを見出し、本発明を完成した。

本発明者はさらに、特定の架橋性ポリマーと発泡剤を含有する樹脂組成物が、積層体として使用する時には高い接着性を有し、積層体の加熱後には易剥離性に優れる接着剤であることを見出し、本発明を完成した。

#### 発明の開示

すなわち、本発明は、

- (A) : 基材
- (B) : エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤
- (C) : エネルギーを受容しても剥離しない接着剤

を順次積層してなる積層体及び該積層体を含有してなる物品を提供するものである。

本発明は、さらに、エポキシ樹脂及び／又は変性シリコーン樹脂、ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物、および該樹脂組成物を有効成分とする接着剤を提供するものである。

以下、本発明について、詳細に検討する。

本発明で使用されるエネルギーとしては、本発明の積層体から基材をリサイクルする際に、該積層体を受容するエネルギーであり、具体的には、紫外線、可視光、赤外線、レーザー光等の光エネルギー、マイクロ波、超音波、衝撃波、電波、磁場等の電磁気エネルギー、加熱、冷却等の熱エネルギー、 $\alpha$ 線、 $\beta$ 線、 $\gamma$ 線、X線、中性子線等の原子エネルギー等が挙げられ、中でも光エネルギーおよび熱

エネルギーが好ましく、とりわけ、紫外線および加熱が好適である。

本発明で使用される基材（Ａ）としては、例えば、鉄、鋼鉄、金、銀、銅、アルミニウム等の金属、ガラス、石膏、陶磁器、セラミックス等の無機物、ポリオレフィン、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリエーテル、ポリイミド、ポリアミド、エポキシ、ポリウレタン、ＡＢＳ、ゴム等のプラスチックあるいは合成繊維、綿、麻、絹等の天然繊維、ビスコースレーヨン、酢酸セルロース等の化繊、木材、紙、皮革等が挙げられる。中でも、金属、プラスチックが好ましい。

本発明の基材（Ａ）として、繊維強化複合材料、無機充填剤を含有するプラスチック等の複合材料を使用してもよい。

また、基材（Ａ）には、必要に応じて、（Ｂ）との接着面に離型剤、メッキ等の被覆、プラズマやレーザー等による表面改質、表面酸化、エッチング等の表面処理を実施してもよい。

本発明で使用されるエネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤（Ｂ）とは、本発明の積層体を使用する際には基材と強く接着し、本発明の積層体にエネルギーを受容せしめることにより基材と容易に剥離可能となる接着剤である。具体的には、加熱や紫外線照射等によりエネルギーを受容して接着剤の接着力が低下する樹脂、エネルギーを受容すると発泡する発泡剤を含有せしめた樹脂等が例示される。

エネルギーを受容して接着剤の接着力が低下する樹脂を具体的に例示すると、加熱により接着力が低下する樹脂としては、例えば、エチレン-酢酸ビニル共重合体等の低融点のホットメルト型の接着剤用樹脂、所定温度まで加熱せしめるとワックス等の固体可塑剤が部材との界面にブリードする熱可塑性接着剤等が挙げられ、紫外線により接着力が低下する樹脂としては綜研化学社製「ＳＫダインスＷ－２」等が挙げられる。

また、後者に使用されるエネルギーを受容すると発泡する発泡剤としては、例えば、加熱することにより体積膨張するものが挙げられ、具体的には、無機発泡剤、有機発泡剤および熱膨張性中空球体等が例示される。無機発泡剤としては、重炭酸ナトリウム、炭酸アンモニウム、重炭酸アンモニウム、亜硝酸アンモニウ

ム等の炭酸塩化合物、ポリリン酸アミド、ポリリン酸アンモニウム、リン酸メラミン等のリン酸塩化合物、でんぷん、セルロース、糖類、ジペンタエリスリトール等の炭化性材料、マグネシウム末、アルミニウム末等の軽金属、水素化ホウ素ナトリウム、水素化ナトリウム等の水素化物、アジ化ナトリウム等のアジ化物等が挙げられる。有機発泡剤としては、アゾジカルボンアミド、アゾビスイソブチロニトリル等のアゾ化合物、ジニトロソペンタメチレンテトラミン、N, N'-ジニトロソ N, N'-ジメチルテレフタルアミド等のニトロソ化合物、p-トルエンスルホニルヒドラジド、p, p'-オキシピス（ベンゼンスルホニルヒドラジド）、ヒドラゾルカルボンアミド等のヒドラジド化合物、p-トルエンスルホニルアジド、アセトン-p-スルホニルヒドラゾン、メラミン、尿素、ジシアンジアミド等々が挙げられる。

また、熱膨張性中空球体としては、例えば、松本油脂製薬（株）製「マイクロスフェア」のようにポリ塩化ビニリデン、塩化ビニリデンとアクリロニトリルの共重合体、ポリアクリロニトリル、アクリロニトリルとアクリル酸メチルの共重合体等からなる殻部分の内部にエタン、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン等の低沸点炭化水素を含有する粒径1～50 $\mu$ の球体等が挙げられる。

上記発泡剤の中でも熱膨張性中空球体が好適である。

なお、上記の発泡剤は単独あるいは2種以上併用してもよい。

接着剤（B）として使用される発泡剤を含有する樹脂としては、例えば、酢酸ビニルエマルジョン、ユリア、シアノアクリレート、ウレタン等の室温硬化型の樹脂、フェノール、エポキシ等の熱硬化性樹脂、ウレタン-アクリレート、エポキシ-アクリレート等の光硬化性樹脂、エチレン-ビニルエステル系共重合体等ホットメルト型の樹脂等が挙げられる。中でも、熱硬化性樹脂および／または光硬化性樹脂等の架橋性ポリマーが好ましく、とりわけ、光硬化性樹脂が好適である。

発泡剤を含有する樹脂として、粘着タックを有する粘着剤を使用すると、積層体製造時に表面が粘着して取扱いにくいことから好ましくない。

本発明におけるエネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤（B）

には、必要に応じて、有機溶媒および水等の溶剤、ガスバリア性を有するポリビニルアルコール、ポリアミド、ポリエステル等の熱可塑性樹脂、充填剤、酸化防止剤、重合禁止剤、密着付与剤、界面活性剤等の表面調整剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤および帯電防止剤等を含有することができる。

本発明におけるエネルギーを受容しても剥離しない接着剤（C）としては、本発明の積層体からなる物品を廃棄する際に、該物品にエネルギーを受容せしめても、接着剤の接着力が低下しない接着剤であれば良く、具体的には、酢酸ビニルエマルジョン、ユリア、シアノアクリレート、ウレタン等の室温硬化型の樹脂、フェノール、エポキシ等の熱硬化性樹脂、ウレタン－アクリレート、エポキシ－アクリレート等の光硬化性樹脂、エチレン－ビニルエステル系共重合体等ホットメルト型の樹脂等が挙げられる。中でも、ホットメルト型の樹脂や室温硬化型の樹脂、熱硬化性樹脂および光硬化性樹脂等の架橋性ポリマーが好ましく、とりわけ、熱硬化性樹脂および光硬化性樹脂が好適である。

接着剤（C）としては、本発明の積層体からなる物品を廃棄する際に、該積層体に受容せしめるエネルギーを透過することが好ましい。

接着剤（C）として、発泡ウレタン樹脂、発泡ユリア樹脂等を使用すると、（C）に気泡が存在して、接着力が低下することから、好ましくない。また、（C）等のエネルギーを受容しても剥離しない接着剤として、粘着タックを有する粘着剤を使用すると、積層体製造時に表面が粘着して取扱いにくいことから好ましくない。

接着剤（B）として発泡剤を含有する接着剤を用いる場合は、接着剤（C）として（B）で用いる樹脂と同じ樹脂を用いてもよい。

本発明で使用される接着剤（C）には、必要に応じて、有機溶媒および水等の溶剤、ガスバリア性を有するポリビニルアルコール、ポリアミド、ポリエステル等の熱可塑性樹脂、充填剤、酸化防止剤、重合禁止剤、密着付与剤、界面活性剤等の表面調整剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤および帯電防止剤等を含有することができる。

上記のように、本発明は、（A）：基材、（B）：エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤、および（C）：エネルギーを受容しても剥離しな

い接着剤を順次積層してなる積層体であるが、

中でも、上記積層体の接着剤（C）の接着層表面に、

（B'）：エネルギーを受容することにより剥離可能となる（B）と同種  
あるいは異なる種類の接着剤

（A'）：（A）と同種あるいは異なる種類の基材  
を順次積層してなる積層体は、（A）及び（A'）のいずれの基材も、リサイクル  
できることから好ましい。

また、（A）、（B）、（C）、（B'）、（A'）からなる積層体の基材（A'）  
において、接着層が積層していない（A'）の表面上に、エネルギーを受容する  
ことにより剥離可能となる接着剤、エネルギーを受容しても剥離しない接着剤等  
を順次積層してもよい。

この場合でも、接着剤（C）としては、本発明の積層体からなる物品を廃棄す  
る際に、該積層体に受容せしめるエネルギーを透過することが好ましい。ここで、  
透過とは、積層体がエネルギーを一方向から受容する際に、エネルギー受容側の  
基材を剥離せしめるとともに、その反対側の基材を剥離せしめる程度にエネルギ  
ーが伝播することを意味する。つまり、（A）、（B）、（C）、（B'）およ  
び（A'）を順次積層してなる積層体において、（A）の接着剤が積層していな  
い方向からエネルギーを積層体に受容せしめると、エネルギーは（C）を透過す  
るから、（B）のみならず（B'）も接着力が低下し、（A）および（A'）の  
いずれの基材も剥離することから、エネルギーを受容しても剥離しない接着剤

（C）としては、本発明の積層体に受容せしめるエネルギーを透過することが好  
ましい。

また、本発明の積層体の中でも、（B）：エネルギーを受容することにより剥  
離可能となる接着剤、および（C）：エネルギーを受容しても剥離しない接着剤  
として、それぞれ、（B-1）：発泡剤を含有する架橋性ポリマー、および（C  
-1）：架橋性ポリマーを用いたものが好ましい。すなわち、

（A）：基材

（B-1）：発泡剤を含有する架橋性ポリマー

（C-1）：架橋性ポリマー

を順次積層してなることを特徴とする積層体が好ましい。

(B-1) および (C-1) に用いられる架橋性ポリマーとは、接着前には塗布可能な液状、あるいは溶剤を含有する溶液あるいは熔融物であって、接着したのち分子内架橋して3次元高分子となるポリマーであり、例えば、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂等が挙げられる。

光硬化性樹脂とは、通常、光硬化性を有するオリゴマーおよび／またはモノマーと、光重合開始剤とを含有する樹脂である。光硬化性を有するオリゴマーおよび／またはモノマーとしては、例えば、光ラジカル重合し得るような少なくとも1つの不飽和炭素-炭素結合を有するオリゴマーおよび／またはモノマー、光マイケル付加重合し得るような分子末端に二重結合を有するオリゴマーとポリチオールとの組み合わせ、ならびに光カチオン重合し得るような脂環式エポキシ化合物等が挙げられる。中でも、少なくとも1つの不飽和炭素-炭素結合を有するオリゴマーおよび／またはモノマーを使用することが好ましい。

不飽和炭素-炭素結合を有するオリゴマーとしては、通常、アクリロイル基、メタクリロイル基およびビニル基等から選ばれる少なくとも1種類の不飽和基を有するオリゴマー等が使用される。具体的には、ウレタンアクリレート、ウレタンメタクリレート等のウレタンアクリレート類、エポキシアクリレート、エポキシメタクリレート等のエポキシアクリレート類、ポリエステルアクリレート、ポリエステルメタクリレート等のポリエステルアクリレート類、メラミンアクリレート、メラミンメタリレート等のメラミンアクリレート類、アクリル樹脂アクリレート類、不飽和ポリエステル類およびポリエン類等が例示される。

ウレタンアクリレート類としては、例えば、有機ポリイソシアネート、ポリオールおよびヒドロキシアクリレート系化合物等を反応せしめて得られたものであっても、有機ポリイソシアネートおよびヒドロキシアクリレート系化合物を反応せしめて得られたものであってもよい。

エポキシアクリレート類としては、例えば、ビスフェノールAエポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂等のエポキシ樹脂にアクリル酸および／またはメタクリル酸等を反応せしめて得られたもの等が挙げられる。

ポリエステルアクリレート類としては、例えば、多価アルコールと多価カルボ

ン酸とから合成されるポリエステルポリオールにアクリル酸および／またはメタクリル酸等を反応せしめて得られたもの等が挙げられる。

メラミンアクリレート類としては、例えば、メラミン、尿素、ベンゾグアミン等をホルマリン等と縮重合せしめて得られるメラミン樹脂に $\beta$ -ヒドロキシエチルアクリレート等と脱アルコール反応せしめて得られたもの等が挙げられる。

アクリル樹脂アクリレート類としては、例えば、アクリル樹脂に含まれるカルボン酸基、水酸基、グリシジル基等の官能基にアクリル酸および／またはメタクリル酸等を反応せしめて得られたもの等が挙げられる。

不飽和ポリエステル類としては、例えば、フマル酸、無水マレイン酸等の $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和ジカルボン酸にポリオールを反応せしめて得られたもの等が挙げられる。

ポリエン類としては、例えば、有機ポリイソシアネートにアリルアルコールおよび／またはビニルアルコール等を反応せしめて得られたもの等が挙げられる。

一方、不飽和炭素-炭素結合を有するモノマーとしては、通常、単官能アクリル系モノマー類、多官能アクリル系モノマー類およびビニル基含有モノマー類等から選ばれる少なくとも1種類の不飽和基含有モノマー等が使用される。

単官能アクリル系モノマー類としては、通常、分子内に1個のアクリレート基またはメタクリレート基を含む化合物等が使用され、具体的には、イソボロニルアクリレート、イソボロニルメタクリレート、ジシクロペンテニルアクリレート、ジシクロペンテニルメタクリレート、テトラヒドロフルフリルアクリレート、テトラヒドロフルフリルメタクリレート、フェニルアクリレート、フェニルメタクリレート、ベンジルアクリレートおよびベンジルメタクリレート等の環構造を含有するモノマー類ならびに2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルアクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、4-ヒドロキシブチルアクリレート、4-ヒドロキシブチルメタクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレートおよび2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルメタクリレート等の水酸基を含有するモノマー類等が挙げられる。

また、上記環構造を含有するモノマー類における原料アルコールまたはフェノ



ールを予めアルキレンオキサイドで変性した単官能アクリル系モノマー類等も使用することができる。特に、アルキレンオキサイドの炭素数が2～3の変性物が好ましく、例えば、ジシクロペンテニルオキシエチルアクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチルメタクリレート、フェニルオキシエチルアクリレートおよびフェニルオキシエチルアクリレート等が挙げられる。

多官能アクリル系モノマー類としては、通常、分子内に2個以上のアクリレート基またはメタクリレート基を含む化合物等が使用され、その代表として、アクリレート基含有化合物について例示すると、ポリエチレングリコールジアクリレート、1, 6-ヘキサンジオールジアクリレート、ネオペンチルグリコールジアクリレート、ネオペンチルグリコールヒドロキシピバリン酸ジアクリレート、カプロラクトン変性ネオペンチルグリコールヒドロキシピバリン酸ジアクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート、カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート、トリス[アクリロキシエチル]イソシアネート等が挙げられる。

ビニル基含有モノマー類としては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、分岐脂肪酸ビニル等のビニルエステル、スチレン、クロロスチレン、アルキルスチレン、ジビニルベンゼン等の芳香族ビニル、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラクタム等の含窒素ビニル等が挙げられる。

光硬化性樹脂としては、例えば、1種類以上のモノマー、1種類以上のオリゴマー、1種類以上のモノマーと1種類以上のオリゴマーの混合物等が挙げられるが、得られる光硬化性樹脂の粘度、硬化性および接着性等から、1種類以上のオリゴマーと1種類以上のモノマーの混合物を使用することが好ましい。

光硬化性樹脂に含有される光重合開始剤としては、例えば、カルボニル化合物、硫黄化合物、アゾ化合物、過酸化物等が挙げられる。中でも、カルボニル化合物が好適であり、具体的にはベンゾフェノン、ベンジル、ミヒラーズケトン、2-クロロチオキサントン、2, 4-ジエチルチオキサントン、ベンゾインエチルエーテル、ジエトキシアセトフェノン、ベンジルジメチルケタール、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケト

ン、2, 2-ジメトキシ-1, 2-ジフェニルエタン-1-オン、2-メチル-1-[4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルホリノプロパン-1-オン、および2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-1, 3, 5-トリアジン等の紫外光を吸収するカルボニル化合物ならびにカンファ-キノンおよび3-ケトクマリン等の可視光を吸収するカルボニル化合物等が例示される。

光重合開始剤として、2種類以上の光重合開始剤を使用してもよい。また、光硬化性樹脂には、必要に応じて、N,N-ジメチルアミノアセトフェノン、p-N,N-ジメチル安息香酸エチル等の光重合開始助剤または光増感剤等を含含有していてもよい。

光硬化性樹脂における光重合開始剤の使用量としては、光硬化性を有するオリゴマーおよび/またはモノマー100重量部に対して、通常、0.5~20重量部程度である。

光硬化性樹脂として、例えば、「スミフラッシュ XR-235、XR-98」(住友化学工業(株)製光硬化性樹脂)、「ダイキュア SD1700」(大日本インキ工業(株)製光硬化性樹脂)等の市販品の光硬化性樹脂を使用してもよい。

(B-1) および(C-1) に用いられる架橋性ポリマーとして使用される熱硬化性樹脂としては、例えば、ノボラック樹脂、レゾール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、アルキド樹脂、イミド樹脂、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、末端に反応性シリル基を導入したシリル基末端ポリエーテル等の変性シリコーン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂等が挙げられ、中でも、エポキシ樹脂、変性シリコーン樹脂およびエポキシ樹脂と変性シリコーン樹脂の混合物が好適である。

熱硬化性樹脂として、例えば、「アラルダイト ラピッド」(チバスペシャリティケミカルズ社製エポキシ接着剤)、「ER-10」(日本エヌエスシー社製エポキシ樹脂接着剤)、「ボンドクイック5」(コニシ社製エポキシ接着剤)、「EP-330」(セメダイン社製エポキシ接着剤)、「スーパーX」(セメダイン社製変性シリコーン接着剤)、「ボンドサイレックスクリヤー」(コニシ社製変性シリコーン接着剤)、「タケラックA-385+タケネートA-50」(武田

薬品工業社製ウレタン接着剤)等の市販品の熱硬化性樹脂を使用してもよい。

熱硬化性樹脂は、必要に応じて、硬化剤を含有していてもよい。具体的には、ノボラック樹脂に用いられるヘキサメチレンテトラミン等、エポキシ樹脂に用いられるポリアミンや酸無水物等、ウレタン樹脂に用いられるイソシアネート等、レゾール樹脂、アルキド樹脂等の用いられる酸、変性シリコーン樹脂に用いられる錫化合物やアミン化合物等、不飽和ポリエステル樹脂に用いられる過酸化物とスチレン等が例示される。

(B-1) および (C-1) に用いられる架橋性ポリマーには、接着性および易剥離性が低下しない範囲で、有機溶媒および水等の溶剤、ガスバリア性を有するポリビニルアルコール、ポリアミド、ポリエステル等の熱可塑性樹脂、充填剤、酸化防止剤、重合禁止剤、密着付与剤、界面活性剤等の表面調整剤、紫外線吸収剤、老化防止剤および帯電防止剤等を含有してもよい。

本発明の (B-1) は発泡剤を含有する架橋性ポリマーであるが、中でも、発泡剤を含有する光硬化性樹脂が好適である。

また、上述のように、(B-1) として用いる熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂及び／又は変性シリコーン樹脂が好ましい。すなわち、好ましい (B-1) として、エポキシ樹脂、変性シリコーン樹脂またはエポキシ樹脂と変性シリコーン樹脂の混合物、ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物が挙げられる。この樹脂組成物は、新規なものであり、それ自体が高い接着性を有するのみならず、当該積層体を加熱後は易剥離性に優れるとの特徴を有するので、本発明の積層体のみならず他の積層体等にも、接着剤として用いることができる。従って、本発明は、エポキシ樹脂及び／又は変性シリコーン樹脂、ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物、および当該樹脂組成物を有効成分とする接着剤も提供する。

ここで用いられるエポキシ樹脂としては、例えば、エポキシ基を含有する主剤と硬化剤を含有し、通常、発泡剤と混合する際には硬化していないか、一部硬化していても基材に塗布し得る粘度を有しており、接着後には硬化してなる樹脂等が挙げられる。

ここで、主剤としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノ

ボラック型エポキシ樹脂、臭素化エポキシ樹脂等のグリシジルエーテル系エポキシ樹脂；ブタジエン、ペンタジエン、ビニルシクロヘキセン、ジシクロペンチルエーテル等の二重結合をエポキシ化した脂環式エポキシ樹脂；ポリオール、水酸基含有シリコン樹脂等とエピハロヒドリンと反応によって得られるポリグリシジル化合物類等；N,N-ジグリシジルアニリン、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、トリグリシジル-p-アミノフェノール等のグリシジルアミン系樹脂；フタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ジグリシジル-p-オキシ安息香酸等のグリシジルエステル系樹脂等が挙げられる。

尚、主剤として2種類以上の主剤を使用してもよい。主剤としては、中でもグリシジルエーテル系エポキシ樹脂およびグリシジルアミン系樹脂が好ましく、とりわけビスフェノールA型エポキシ樹脂が好適である。

エポキシ樹脂に含有される硬化剤としては、例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジプロピレンジアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ピペリジン、N-アミノエチルピペラジン、メンセンジアミン、m-キシレンジアミン等の脂肪族ポリアミン；2-（ジメチルアミノメチル）フェノール、ビス（ジメチルアミノエチル）フェノール、2, 4, 6-トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール等のジメチルアミノアルキルフェノール類；メタンフェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン等の芳香族アミン、無水トリメット酸、エチレングリコールビス（アンヒドロトリメリテート）、グリセロールトリス（アンヒドロトリメリテート）、無水ピロメリット酸、無水マレイン酸、テトラヒドロ無水フタル酸等の酸無水物；ダイマー酸にポリアミンを反応させるポリアミノポリアミド；2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール等のイミダゾール類；三フッ化ホウ素-アミン錯体；ジシアンジアミド；芳香族ジアゾニウム塩；ポリスルフィド類等が挙げられる。

尚、硬化剤として2種類以上の硬化剤を使用してもよい。硬化剤として、中でもジメチルアミノアルキルフェノール類、ポリアミノポリアミドが好適である。

エポキシ樹脂の主剤と硬化剤の混合方法としては、例えば、発泡剤との混合の

前に主剤と硬化剤を混合する方法、主剤と発泡剤を混合し、接着前に硬化剤を混合する方法、硬化剤と発泡剤を混合し、接着前に主剤を混合する方法、主剤、硬化剤、発泡剤等を一括して混合する方法等が挙げられる。また、エポキシ樹脂に変性シリコーン樹脂を混合してもよい。

本発明における変性シリコーン樹脂としては、例えば、シリル基末端ポリエーテル等と、錫系化合物や脂肪族ポリアミン等の硬化触媒を含有する樹脂等が挙げられる。この樹脂は、発泡剤と混合する際には硬化していないか、一部硬化していても基材に塗布し得る粘度を有しており、接着後には水分を吸収してシロキサン結合を形成する。

変性シリコーン樹脂の製造方法について、シリル基末端ポリエーテルを具体例として説明すると、ポリプロピレングリコール等の末端ヒドロキシル基をメトキシ基等のアルコキシド基に転換させた後、塩化メチレン等の多価ハロゲン化合物を反応させることによって分子量を増大させ分子量延長反応により高分子量化した後、 $\text{CH}_2=\text{CHRX}$ （ここでRは低級アルキル基を表わし、Xはハロゲン原子を表す。）で表わされる有機ハロゲン化合物を反応させることによって末端にオレフィン基を導入し、次に、脱塩精製工程を経てヒドロキシル化反応によって末端に反応性シリル基を導入した分子量5000～50000程度のシリル基末端ポリエーテルを得る。

ここでポリプロピレングリコールとしては、プロピレンオキサイドに加え、（メタ）アクリル酸、（メタ）アクリル酸エステル等を共重合せしめたものを用いてもよい。

変性シリコーン樹脂には、通常、オルガノシラン化合物、オルトギ酸エステル等の脱水剤、N-β-（アミノエチルー）γ-アミノプロピルトリメトキシシランやγ-アミノプロピルトリメトキシシラン等の接着付与剤等を含有する。

また、該樹脂にシランカップリング剤、だれ防止剤等を含有せしめてもよい。

さらに、変性シリコーン樹脂として、「ボンドサイレックスクリヤー」（（株）コニシ製）、「スーパーX」（セメダイン（株）製）等の市販品を使用してもよい。

変性シリコーン樹脂におけるシリル基末端ポリエーテル等と硬化触媒との混合

方法としては、例えば、発泡剤との混合の前にシリル基末端ポリエーテル、脱水剤、接着付与剤、硬化触媒等を混合する方法、シリル基末端ポリエーテル、脱水剤、接着付与剤および発泡剤等を混合し、接着前に硬化触媒等を混合する方法、硬化触媒と発泡剤等を混合し、接着前にシリル基末端ポリエーテル、脱水剤、接着付与剤等を混合する方法、変性シリコーン樹脂を構成するすべての成分を一括して混合する方法等が挙げられる。

また、変性シリコーン樹脂とエポキシ樹脂を混合してもよい。

上述のように本発明で使用される架橋性ポリマーには、接着性および易剥離性が低下しない範囲で、他の樹脂等を配合してもよいが、エポキシ樹脂及び/又は変性シリコーン樹脂を用いる場合も、接着性および易剥離性を損なわない範囲で他の樹脂を配合してもよい。これらの樹脂としては、不飽和ポリエステル等の重合性二重結合含有モノマー類およびそのプレポリマー類；ポリブタジエン、マレイン化ブタジエン、エポキシ化ブタジエン、マレイン化ブタジエン、ブタジエン-アクリロニトリル共重合体およびそのカルボキシル基含有樹脂、ポリクロロプレン、マレイン化ブタジエン、ブタジエン-アクリロニトリル共重合体およびそのカルボキシル基含有樹脂、ポリクロロプレン、ブタジエン-スチレン共重合体、ポリイソプレン、ブチルゴム、フッ素ゴム、天然ゴム等の低分子量液状～高分子量エラストマー；ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリ-4-メチルペンテン、ポリスチレン、AS樹脂、MBS樹脂、ABS樹脂、ポリエチレン-プロピレン共重合体、テトラフッ化エチレン-ヘキサフッ化プロピレン共重合体類；ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリスルホン、ポリエステル、ポリイミド、ポリフェニレンサルファイド等の高分子量ポリマーおよびそれらの低分子量プレポリマーもしくはオリゴマー；ポリウレタン、多官能性マレイミド類等が例示される。

また同様に、エポキシ樹脂及び/又は変性シリコーン樹脂を用いる場合も、この樹脂に無機および有機の充填剤、染料、顔料、増粘剤、消泡剤、分散剤、難燃剤、光沢剤、チキソ性付与剤、密着付与剤、界面活性剤等の表面調整剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤および帯電防止剤等の添加剤、トルエンやメタノール等の溶剤等を配合せしめてもよい。

本発明の積層体の発泡剤を含有する架橋性ポリマー（B-1）中の発泡剤の含有量、およびエポキシ樹脂及び／又は変性シリコン樹脂ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物中の発泡剤の含有量としては、積層体等の使用時には十分接着力を有するとともに、エネルギーを照射して基材（A）を回収する時には、接着層（B）が（A）から容易に剥離し得る程度に接着力が低下するのに必要な量である。具体的には、発泡剤の種類によっても異なるが、例えば、発泡剤が熱膨張性中空球体の場合には、エポキシ樹脂及び／又は変性シリコン樹脂100重量部に対して、通常、10～80重量部程度であり、好ましくは、30～70重量部程度である。また、発泡剤が有機発泡剤の場合には、エポキシ樹脂及び／又は変性シリコン樹脂100重量部に対して、通常、20～100重量部程度であり、好ましくは、30～80重量部程度である。

本発明の（C-1）は、発泡剤を含有しない架橋性ポリマーである。（C-1）は、光硬化性樹脂、熱硬化性樹脂等の（B-1）に使用され得る架橋性ポリマーが使用できる。また、（C-1）と（B-1）に使用され得る架橋性ポリマーは同種類でも異なった種類の架橋性ポリマーでも良く、（C-1）の架橋性ポリマーとして2種類以上の架橋性ポリマーを混合して使用してもよい。中でも、熱硬化性樹脂が好ましく、とりわけ、上述したようなエポキシ樹脂および変性シリコン樹脂が好適である。

本発明の積層体を製造する方法としては、例えば、（1）（A）と（B）からなる積層体の接着剤（B）の接着層表面に、（C）を介して任意の被着体と積層する方法、（2）任意の被着体の上に（C）、（B）、（A）を順次積層する方法、（3）（A）と（B）からなる積層体ならびに（A'）と（B'）からなる積層体をそれぞれ作成したのち、（B）および（B'）の接着層の表面同士を（C）を介して積層する方法、（4）（A）、（B）、（C）、（B'）、（A'）を順次積層する方法等が挙げられる。

ここで、被着体とは（C）に接着し得るものであり、例えば、（A）のような基材、自動車車体や家電製品等の物品等が挙げられる。また、（B）または（B'）として上記の（B-1）、（C）または（C'）として、上記の（C-1）を用いるのが好ましい。

エポキシ樹脂及び／又は変性シリコン樹脂ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物については、(C)を用いずにこれと被着体とを積層しても高い接着力と加熱後の易剥離性が得られる。例えば、2つの被着体間をこの樹脂組成物で接着した場合でもよい。

また、必要に応じて、得られた積層体に圧縮、後硬化等の処理を実施してもよい。

ここで、(B)、(C)等の接着層を積層する方法としては、例えば、バーコート塗工、ロールコート塗工、スプレー塗工、ブレードコート塗工、スクリーン塗工、アプリケーションを用いる方法、スピコートを用いる方法等が挙げられる。

(B)が発泡剤を含有する樹脂組成物の場合、接着剤の厚みとしては、含有する発泡剤の粒度以上であれば良く、通常5～400 $\mu$ m程度である。

本発明の積層体の製造方法の(3)の場合についての具体例として、板状の基材(A)および(A')のそれぞれの片面に、熱膨張性中空球体を含有する光硬化性樹脂をスピコートしたのち光硬化せしめ、(A)/(B)および(A')/(B')を得る。次に、(B)の表面に熱硬化性樹脂(C)をバーコートしたのち、(C)を介して(A')/(B')を積層して室温にて静置することにより、(A)/(B)/(C)/(B')/(A')を積層する方法等が挙げられる。

かくして得られた積層体は、例えば、基材の再利用が求めている、冷蔵庫、洗濯機、エアコン、電子レンジ、掃除機、テレビ等の家電製品、パソコン、プリンター、複写機、電話等の事務用品、バンパー、バッテリー容器等の自動車用品、家具、住宅構造材等の生活用品、シーリング材等の建材、液晶パネル、半導体、プリント配線板、集積回路等のエレクトロニクス製品、二次電池等の電池材料におけるベアセルのパッケージ等のエレクトロニクス製品等に使用し得る。

本発明の積層体にエネルギーを照射することにより、基材が積層体から容易に剥離、回収され、再利用に供し得る。

例えば、照射するエネルギーとして熱エネルギーを用いる場合は、例えば、オーブン、温水槽等に積層体を入れ、加熱により接着剤層を発泡せしめて基材を回収する方法、火炎、赤外線、スチーム、超音波、電磁波等を積層体に照射して接



着剤層を発泡せしめて基材を回収する方法等が挙げられる。

(B) : エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤として (B-1) を用いる場合の例としてより具体的には、オープン、温水槽などに積層体を入れ、通常、80～300℃程度、好ましくは100～200℃程度で加熱することにより (B-1) を発泡せしめて基材を回収する方法、火炎、赤外線、スチーム、超音波、電磁波などを物品に照射して (B-1) を発泡せしめて基材を回収する方法、などが挙げられる。中でも100～200℃程度に予熱したオープンにて加熱することにより (B-1) を発泡せしめて基材を回収する方法が好適である。

かくして得られた基材は接着剤層がほとんど付着していないか、接着剤層が付着していても、基材から容易に剥離し得る程度であり、回収された基材は、再利用することができる。

また、基材が、金属、熱可塑性プラスチック等の場合には、基材を熔融成形して再利用することもできる。

## 実施例

以下に実施例を示して本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。例中の部および%は、特に断らないかぎり重量基準を意味する。

### <基材 : A>

基材として以下の試験片を使用した。

A-1 : アルミニウム (AL) 板                      25mm × 100mm、厚み 1 mm

(住友軽金属 (株) 製 A1050P HB (鏡面仕上))

A-2 : ポリカーボネート (PC) 板                      25mm × 100mm、厚み 2 mm

(帝人 (株) 製 タキロン1600)

### <エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤またはその比較対象 : B>

発泡剤を含有する架橋性ポリマーとして、次に示した架橋性ポリマーを使用した。

- B-1 : アクリレート系光硬化性樹脂「スミフラッシュ XR-98」  
(住友化学工業(株)製) 100重量部に熱膨張性中空球体  
「マイクロスフェアF-30D(以下、F30Dという)」(松本油脂製薬(株)製)を50重量部配合した。
- B-2 : エポキシ系熱硬化性樹脂「ER-10」(日本エヌエスシー社製)  
100重量部に「F30D」を50重量部配合した。
- B-3 : 「ウレタン系接着剤+発泡剤」  
二液ウレタン系接着剤「タケラック A385」50重量部、  
「タケネート A-50」(商品名; 武田薬品工業(株)製)  
50重量部に「F30D」を50重量部配合した。
- B-4 : アクリレート系光硬化性樹脂「スミフラッシュ XR-98」  
(住友化学工業(株)製) (発泡剤配合なし。C-3と同じ。)
- B-5 : 「エポキシ樹脂+発泡剤」  
エポキシ樹脂(二液)「ER-10」(商品名; 日本NSC(株)製、  
以下「ER10」という)の二液をそれぞれ50部ずつ(計100部)  
と、有機発泡剤「セルマイクS」(商品名; 三協化成(株)製)を  
50部を混合した。
- B-6 : 「変性シリコーン樹脂+発泡剤」  
変性シリコーン樹脂(一液)「ボンドサイレックスクリヤー」(商品名;  
コニシ(株)製、以下「サイレックス」という)100部に「F-30D」  
を50部を混合した。
- <エネルギーを受容しても剥離しない接着剤: C>
- C-1 : エポキシ系熱硬化性樹脂「アラルダイト ラピッド」  
(チバスペシャリティケミカルズ社製)
- C-2 : エポキシ系熱硬化性樹脂「ER-10」(日本エヌエスシー社製)
- C-3 : アクリレート系光硬化性樹脂「スミフラッシュ XR-98」  
(住友化学工業(株)製)
- C-4 : アクリレート系光硬化性樹脂「スミフラッシュ XR-235」  
(住友化学工業(株)製)

C-5：変性シリコーン樹脂（一液）「サイレックス」

C-6：ウレタン樹脂（二液）「ウレタン」

#### <接着性試験>

試験片のそれぞれの端を、実施例1～6及び比較例1～9の場合は、25 mm × 20 mm (= 500 mm<sup>2</sup>) の、実施例7～8及び比較例10～14の場合は、25mm×25mm (=625mm<sup>2</sup>) の接触面積にて接触し、JIS K 6850に準じた引張り試験により、接着力を測定した。

#### 実施例1

リサイクルするべき基材としてAL板（A-1）を使用し、その片面に、エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤（B-1）を300 μmの厚さになるようにバーコートにて積層し、400 mJ/cm<sup>2</sup>の照射量でUV照射を行い硬化させた。次に、（C-4）をリサイクルする必要のない基材であるPC板（A-2）の片面に、70 μmの厚さになるようにスピンコートにて積層し、（B-1）と（C-4）の接着層表面同士を貼り合わせのち、400 mJ/cm<sup>2</sup>の照射量でUV照射を行い硬化せしめ、積層体を完成した。

得られた積層体の接着力は、1 N/mm<sup>2</sup>以上であった。

同様にして作成した積層体を150℃のオーブン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、（A-1）が剥離し、（A-1）上には接着剤がほとんど付着しておらず、リサイクルできる状態であり、リサイクルの必要のない基材（A-2）上には、（B-1）および（C-4）が固化した接着層が付着して、容易に剥離することはできなかった。

#### 実施例2

基材（A-1）「AL板」の片面に接着剤（B-1）を20 μmの厚さになるようにスピンコートにて積層し、400 mJ/cm<sup>2</sup>の照射量でUV照射を行い硬化させ、（A-1）と（B-1）からなる積層物を得た。同様にして、基材（A-2）「PC板」と接着剤（B-1）とからなる積層物を得た。次に、300 μmの厚さの接着剤（C-1）を介して、上記の2つの積層物の接着剤表面同士を接

着し、クリップにて固定し、クリップをしたまま、23℃、50%RHで24時間静置し、積層体を完成した。

得られた積層体の接着力は、いずれも1N/mm<sup>2</sup>以上であった。

同様にして作成した積層体を150℃のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、(A-1)が剥離し、(A-1)上には接着剤がほとんど付着しておらず、リサイクルできる状態であった。残った(A-2)上には、(B-1)、(C-1)および(B-1)固化した接着層が残されたが、該接着層は(A-2)から容易に剥離し、(A-2)はリサイクルできる状態であった。

#### 比較例1～3

接着剤(B-1)の代わりに発泡剤をいれていない接着剤(B-4)を用いた以外は実施例1および2に準じて実施した比較例1～3について、積層体の構成(基材と接着剤の種類と厚さ)、積層体の接着力およびエネルギー受容(150℃×5分間の加熱)後の基材の状態などの結果を、表1にまとめた。

また、表1に示した基材の状態とは以下の状態を表わす。

○：基材が、積層体から容易に剥離し、基材には接着層がほとんど付着していない状態。

×：基材が、積層体から剥離しない、あるいは1N/mm<sup>2</sup>以上の引張り強度では剥離するものの、基材には接着剤が付着し、容易に接着層が基材から剥離できない状態。

表-1

			実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2	比較例 3
積層体	基材 A-1	名称	AL板	AL板	AL板	AL板	AL板
	接着剤 B (A-1側)	名称	B-1	B-1	B-4	B-4	B-4
		厚さ( $\mu\text{m}$ )	300	20	20	20	300
	接着剤 C	名称	C-4	C-1	C-1	C-1	C-1
		厚さ( $\mu\text{m}$ )	70	300	70	70	70
	接着剤 B (A-2側)	名称	なし	B-1	なし	B-4	B-4
		厚さ( $\mu\text{m}$ )	0	20	0	20	300
	基材 A-2	名称	PC板	PC板	PC板	PC板	PC板
接着力 ( $\text{N}/\text{mm}^2$ )			>1.0	>1.0	>1.0	>1.0	1.0
加熱後の剥離状態	基材 A-1		○	○	×	×	×
	基材 A-2		×	○	×	×	×

### 実施例 3

(A-1) の片面に、(B-1) を約  $300\mu\text{m}$  の厚さになるようにバーコートにて積層し、 $400\text{mJ}/\text{cm}^2$  の照射量で UV 照射を行い硬化させた。次に、約  $70\mu\text{m}$  の (C-1) を介して (B-1) の表面と (A-2) を接着し、クリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^\circ\text{C}$ 、 $50\% \text{RH}$  で 24 時間静置し、(A-1) / (B-1) / (C-1) / (A-2) の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $1.6\text{N}/\text{mm}^2$  の引っ張り強度でも剥離せず、 $4.5\text{N}/\text{mm}^2$  の引っ張り強度でようやく (B-1) の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を  $150^\circ\text{C}$  のオーブン中にて 5 分間加熱した。この積層体を取り出したところ、(B-1) が発泡して (A-1) を剥離せしめており、回収された (A-1) には接着層がほとんど付着しておらず、再利用できる状態であった。再利用の必要のない (A-2) には、(B-1) および (C-1) の接着層が付着して、容易に剥離することはできなかった。

#### 実施例 4

(A-1) の片面に、(B-2) を約  $70\text{ }\mu\text{m}$  の厚さになるようにバーコートにて積層し、 $23^{\circ}\text{C}$ 、 $50\%$  RH で 24 時間静置し硬化させた。次に、約  $70\text{ }\mu\text{m}$  の (C-1) を介して (B-2) の表面と (A-2) を接着し、クリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^{\circ}\text{C}$ 、 $50\%$  RH で 24 時間静置し、(A-1) / (B-2) / (C-1) / (A-2) の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $0.5\text{ N/mm}^2$  の引っ張り強度でも剥離せず、 $4.7\text{ N/mm}^2$  の引っ張り強度でようやく (B-2) の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を  $150^{\circ}\text{C}$  のオープン中にて 5 分間加熱した。この積層体を取り出したところ、(B-2) が発泡して (A-1) を剥離せしめており、回収された (A-1) には接着層がほとんど付着しておらず、再利用できる状態であった。再利用の必要のない (A-2) は、(B-2) および (C-1) の接着層が付着して、容易に剥離することはできなかった。

#### 実施例 5

(A-1) の片面に (B-1) を約  $300\text{ }\mu\text{m}$  の厚さになるようにスピンコートにて積層し、 $400\text{ mJ/cm}^2$  の照射量で UV 照射を行い硬化させ、(A-1) / (B-1) を積層した。次に、(A-1) が (A-2) に変わる以外は同様にして、(A-2) / (B-1) を積層した。続いて、(A-1) / (B-1) と (A-2) / (B-1) とを (B-1) の面同士を約  $70\text{ }\mu\text{m}$  の (C-2) を介して接着したのち、クリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^{\circ}\text{C}$ 、 $50\%$  RH で 24 時間静置して、(A-1) / (B-1) / (C-2) / (B-1) / (A-2) の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $1.6\text{ N/mm}^2$  の引っ張り強度で (A-1) 側の (B-1) の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を  $150^{\circ}\text{C}$  のオープン中にて 5 分間加熱した。この積層体を取り出したところ、(B-1) のいずれもが発泡して (A-1) および (A-2) を剥離せしめており、回収された (A-1) には接着剤がほとんど付

着していなかった。(A-2)には、(B-1)および(C-2)の接着層が付着していたが、オープンから取り出す途中で接着層は剥離した。

(A-1)および(A-2)はいずれも再利用できる状態であった。

#### 実施例 6

(A-1)の片面に(B-1)を約 $300\mu\text{m}$ の厚さになるようにスピンコートにて積層し、 $400\text{mJ}/\text{cm}^2$ の照射量でUV照射を行い硬化させ、(A-1)/(B-1)を積層した。次に、(A-1)が(A-2)に変わる以外は同様にして、(A-2)/(B-1)を積層した。続いて、(A-1)/(B-1)と(A-2)/(B-1)とを(B-1)の面同士を約 $70\mu\text{m}$ の(C-1)を介して接着したのち、(A-1)/(B-1)/(C-1)/(B-1)/(A-2)の順序で積層してなるクリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^\circ\text{C}$ 、 $50\%\text{RH}$ で24時間静置し、積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $0.7\text{N}/\text{mm}^2$ の引っ張り強度で(A-2)側の(B-1)の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を $150^\circ\text{C}$ のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、B-1のいずれもが発泡してA-1およびA-2を剥離せしめており、回収されたA-2には接着層がほとんど付着していなかった。

(A-1)には、(B-1)および(C-1)の接着層が付着していたが、オープンから取り出す途中で接着層は剥離した。

(A-1)および(A-2)はいずれも再利用できる状態であった。

#### 比較例 4

実施例3の約 $300\mu\text{m}$ の厚さにバーコートした(B-1)を、(C-3)で約 $20\mu\text{m}$ の厚さになるようにスピンコートにて積層する以外は、実施例1と同様に実施して、(A-1)/(C-3)/(C-1)/(A-2)の順序で積層してなる積層体を得た。

該積層体について接着性試験を実施したところ、 $1.6\text{N}/\text{mm}^2$ の引っ張り強度で(C-3)の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を150℃のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、外観上は加熱前とは変わらず、(A-1)および(A-2)は剥離していなかった。加熱された積層体について接着性試験を実施したところ、1.6 N/mm<sup>2</sup>の引っ張り強度で(C-3)の接着層が剥離した。

#### 比較例5

実施例4のB-2を積層しないこと以外には、実施例4と同様に実施して、(A-1)/(C-2)/(A-2)の順序で積層してなる積層体を得た。

該積層体について接着性試験を実施したところ、0.5 N/mm<sup>2</sup>の引っ張り強度で(C-2)の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を150℃のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、外観上は加熱前とは変わらず、(A-1)および(A-2)は剥離していなかった。加熱された積層体について接着性試験を実施したところ、0.5 N/mm<sup>2</sup>の引っ張り強度で(C-2)の接着層が剥離した。

#### 比較例6

(A-1)の片面に(C-3)を約20 μmの厚さになるようにスピンコートにて積層し、400 mJ/cm<sup>2</sup>の照射量でUV照射を行い硬化させ、(A-1)/(C-3)を積層した。次に、(A-1)が(A-2)に変わる以外は同様にして、(A-2)/(C-3)を積層した。続いて、約70 μmの(B-2)を介して、(A-1)/(C-3)と(A-2)/(C-3)とをC-3の面同士を接着し、クリップにて固定し、クリップをしたまま、23℃、50%RHで24時間静置し、(A-1)/(C-3)/(B-2)/(C-3)/(A-2)の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、1.6 N/mm<sup>2</sup>の引っ張り強度で(C-3)の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を150℃のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、(B-2)の接着層が剥離したが、(A-1)および(A-2)の表面には(C-3)の接着層が付着して、この接着層を容易に剥



離することはできなかった。

#### 比較例 7

(A-1) と (A-2) とを約  $70\text{ }\mu\text{m}$  の (C-1) を介して接着して、クリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^{\circ}\text{C}$ 、 $50\% \text{RH}$  で 24 時間静置し、(A-1) / (C-1) / (A-2) の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $1.6\text{ N/mm}^2$  の引っ張り強度で (C-1) の接着層が剥離した。

同様にして作成した積層体を  $150^{\circ}\text{C}$  のオープン中にて 5 分間加熱した。この積層体を取り出したところ、外観上は加熱前とは変わらず、(A-1) および (A-2) は剥離していなかった。加熱された積層体について接着性試験を実施したところ、 $1.6\text{ N/mm}^2$  の引っ張り強度で (C-1) の接着層が剥離した。

#### 比較例 8

(A-1) の片面に C-3 を約  $300\text{ }\mu\text{m}$  の厚さになるようにスピンコートにて積層し、 $400\text{ mJ/cm}^2$  の照射量で UV 照射を行い硬化させ、(A-1) / (C-3) を積層した。次に、(A-1) が (A-2) に変わる以外は同様にして、(A-2) / (C-3) を積層した。続いて、上記 2 つの積層体を (C-3) の面同士を  $70\text{ }\mu\text{m}$  の (C-1) を介して接着し、クリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^{\circ}\text{C}$ 、 $50\% \text{RH}$  で 24 時間静置し、(A-1) / (C-3) / (C-1) / (C-3) / (A-2) の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $0.2\text{ N/mm}^2$  の引っ張り強度で (A-2) 側の (C-3) の接着層が剥離した。剥離した (C-3) には硬化していない部分がみられた。

#### 比較例 9

(A-1) の片面に (B-3) を約  $200\text{ }\mu\text{m}$  の厚さになるようにバーコートにて塗工し、直ちに (A-2) と接着し、クリップにて固定し、クリップをしたまま、 $23^{\circ}\text{C}$ 、 $50\% \text{RH}$  で 7 日間静置し、(A-1) / (B-3) / (A-2)

の順序で積層してなる積層体を得た。

得られた積層体について接着性試験を実施したところ、 $1.2 \text{ N/mm}^2$ の引っ張り強度で（B-3）が剥離した。

同様にして作成した積層体を $150^\circ\text{C}$ のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、外観上は加熱前とは変わらず、各基材とも剥離していなかった。加熱された積層体について接着性試験を実施したところ、 $0.2 \text{ N/mm}^2$ の引っ張り強度で（B-3）が剥離したが、（A-1）および（A-2）には接着層（B-3）が残存し、剥離することは困難であった。

#### 実施例 7

AL板（A-1）の片面に（B-5）を約 $200 \mu\text{m}$ の厚さになるようにバーコートにて塗工し、直ちに別のAL板（A-2）と貼り合わせ、圧着した状態で室温にて7日間養生硬化させ、（A-1）／（B-5）／（A-2）の順序で積層してなる積層体を得た。（以下接着する基材を、基材1、基材2とする。）

該積層体について接着性試験を実施したところ（以下、加熱前接着力という）、 $1.2 \text{ N/mm}^2$ の引っ張り強度で接着剤層が剥離した。

同様にして作成した積層体を $160^\circ\text{C}$ のオープン中にて5分間加熱した。この積層体を取り出したところ、（B-5）が発泡して（A-2）を剥離せしめており、回収された（A-1）には接着剤がほとんど付着しておらず、再利用できる状態であった。

#### 実施例 8、比較例 10～14

基材および接着剤の種類を表2に記載のものを使用し、実施例7に準じて積層体を作成し、加熱前接着力、加熱後における基材の剥離強度（以下、剥離強度という）および加熱後の基材における接着剤の付着の有無（以下、付着の有無という）について実施例8および比較例10～14の結果を実施例7とともに表2に表した。

表-2

	実施例		比較例			
	7	8	10	11	12	13
基材 1	A-1	A-2	A-1	A-2	A-2	A-2
接着剤 種類	B-5	B-6	C-2	C-5	C-6	B-3
基材 2	A-1	A-2	A-1	A-2	A-2	A-2
加熱前接着力 (N/mm <sup>2</sup> )	1.2	2.3	2.8	2.8	3.3	1.4
加熱条件 <sup>1)</sup>	(ア)	(イ)	(ア)	(イ)	(イ)	(イ)
剥離強度(N/mm <sup>2</sup> )	0	0	4.8	2.1	2.6	1.4
付着の有無 <sup>2)</sup>	○	○	×	×	×	×

1) (ア) : 160℃に加熱されたオープンに5分間静置した。

(イ) : 150℃に加熱されたオープンに5分間静置した。

2) 剥離強度を測定後、基材に接着剤が付着していない場合を○、基材に接着剤が付着するものを×とした。

本発明の積層体は、積層体の使用時には高い接着性を有し、エネルギーを積層体に照射した後には積層体から基材が剥離され、基材に接着層が付着してしない、あるいは接着層が付着していても基材から容易に剥離し得るという、易剥離性に優れた積層体である。

また、エポキシ樹脂及び／又は変性シリコン樹脂、ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物を有効成分とする接着剤も、加熱するまでは高い接着性を有し、加熱後には、接着剤に接着する基材を容易に剥離し、しかも基材に接着剤層がほとんど付着しない、あるいは接着剤層が付着していても基材から容易に剥離し得るという易剥離性を有する。

本発明の積層体および本発明の樹脂組成物と基材とからなる積層体は、自動車用品、家電製品、事務用品、生活用品、建材あるいはエレクトロニクス製品等の基材の再利用が求められる分野に使用し得る。さらに、回収された基材はリサイクル（再利用）することができる。

## 請求の範囲

1. (A) : 基材、(B) : エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤および (C) : エネルギーを受容しても剥離しない接着剤を、順次積層してなる積層体。
2. 基材 (A) が、金属、無機物、プラスチック、合成繊維、天然繊維、化繊、木材、紙、皮革から選ばれる少なくとも 1 種類であることを特徴とする請求項 1 に記載の積層体。
3. 接着剤 (B) が、エネルギーを受容すると接着力が低下する接着剤であることを特徴とする請求項 1 ~ 2 いずれかに記載の積層体。
4. 接着剤 (B) が、エネルギーを受容すると発泡する発泡剤を含有せしめてなる接着剤であることを特徴とする請求項 1 ~ 2 いずれかに記載の積層体。
5. 接着剤 (B) が、室温硬化型の樹脂、ホットメルト型の樹脂、熱硬化性樹脂、光硬化性樹脂から選ばれる少なくとも 1 種類と発泡剤とからなることを特徴とする請求項 4 に記載の積層体。
6. (B) : エネルギーを受容することにより剥離可能となる接着剤および (C) : エネルギーを受容しても剥離しない接着剤が、それぞれ、(B-1) : 発泡剤を含有する架橋性ポリマーおよび (C-1) : 架橋性ポリマーであることを特徴とする請求項 1 又は 4 に記載の積層体。
7. 架橋性ポリマーが、熱硬化性樹脂及び／又は光硬化性樹脂であることを特徴とする請求項 6 に記載の積層体。
8. 発泡剤が熱膨張性中空球体、無機発泡剤および有機発泡剤から選ばれる少なくとも 1 種類であることを特徴とする請求項 4 ~ 7 のいずれかに記載の積層体。
9. 接着剤 (C) の接着層表面にさらに、(B') : エネルギーを受容することにより剥離可能となる (B) と同種あるいは異なる種類の接着剤および (A') : (A) と同種あるいは異なる種類の基材を順次積層してなる請求項 1 ~ 8 の積層体。
10. (B) 及び／又は (B') が架橋性ポリマーの光硬化性樹脂であって、(C) 及び／又は (C') が架橋性ポリマーの熱硬化性樹脂であることを特徴とする請

求項 9 に記載の積層体。

11. 接着剤 (C) が、接着剤 (B) 及び (B') を剥離可能となるまでエネルギーを透過せしむる接着剤であることを特徴とする請求項 9 または 10 に記載の積層体。

12. エポキシ樹脂及び／又は変性シリコン樹脂、ならびに発泡剤を含有する樹脂組成物。

13. 発泡剤が熱膨張性中空球体、無機発泡剤および有機発泡剤から選ばれる少なくとも 1 種類であることを特徴とする請求項 12 に記載の樹脂組成物。

14. 請求項 12 または 13 に記載の樹脂組成物を有効成分とする接着剤。

15. 請求項 14 に記載の接着剤と、被着体とからなることを特徴とする積層体。

16. 請求項 1～11 および 15 のいずれかに記載の積層体を含有してなる物品。

17. 請求項 1～11 および 15 のいずれかに記載の積層体にエネルギーを受容せしめ、基材を剥離したのち、リサイクルすることを特徴とする基材のリサイクル方法。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/08195

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> B32B 7/12, C09J 7/00, 9/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> B32B 1/00 - 35/00, C09J 7/00 - 201/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP, 10-119169, A (Ricoh Company, Ltd.), 12 May, 1998 (12.05.98), Claims, especially, Claim 2; Mode for Carrying out the Invention; especially, Par. Nos. [0047]-[0054]; drawings (Family: none)	1-17 8, 13
X Y	JP, 7-138538, A (Daicel Chemical Industries, Ltd.), 30 May, 1995 (30.05.95), Claims; Par. Nos. [0012] to [0022], [0032] to [0041]; example (Family: none)	1-17 8, 13
Y A	JP, 5-269906, A (TOPPAN PRINTING CO., LTD.), 19 October, 1993 (19.10.93), Claims; Par. Nos. [0010] to [0014], [0015] to [0016]; example; drawings (Family: none)	8, 13 1-17
Y A	US, 5609954, A (Nitto Denko Corporation), 11 March, 1997 (11.03.97), Claims; Column 3, line 35 to Column 4, line 20; example & JP, 5-43851, A Claims; Par. Nos. [0018] to [0021]; example	8, 13 1-17



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
02 February, 2001 (02.02.01)Date of mailing of the international search report  
13 February, 2001 (13.02.01)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/08195

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	& EP, 527505, A2 & DE, 69227955, C  JP, 8-247629, A (Matsushita Refrig. co., Ltd.), 27 September, 1996 (27.09.96), Claims; example; drawings (Family: none)	1-17



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> B 3 2 B 7/12, C 0 9 J 7/00, 9/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> B 3 2 B 1/00 - 35/00, C 0 9 J 7/00 - 201/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P, 10-119169, A (株式会社リコー), 12. 5月. 1998 (12. 05. 98), 特許請求の範囲とくに請求項2, 発明の実施の形態とくに【0047】～【0054】, 図面 (ファミリーなし)	1-17 8, 13
X Y	J P, 7-138538, A (ダイセル株式会社), 30. 5月. 1995 (30. 05. 95), 特許請求の範囲, 【0012】～【0022】, 【0032】～ 【0041】, 実施例 (ファミリーなし)	1-17 8, 13

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 02. 01

国際調査報告の発送日

13.02.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中 田 とし子 印

4 F

8017

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP, 5-269906, A (凸版印刷株式会社), 19. 10月. 1993 (19. 10. 93), 特許請求の範囲, 【0010】～【0014】, 【0015】～ 【0016】, 実施例, 図面 (ファミリーなし)	8, 13 1-17
Y A	US, 5609954, A (Nitto Denko Corporation), 11. 3月. 1997 (11. 03. 97), 請求の範囲, 第3欄第35行～第4欄第20行, 実施例 & JP, 5-43851, A, 特許請求の範囲, 【0018】～ 【0021】, 実施例 & EP, 527505, A2 & DE, 69227955, C	8, 13 1-17
A	JP, 8-247629, A (松下冷機株式会社), 27. 9月. 1996 (27. 09. 96), 特許請求の範囲, 実施例, 図面 (ファミリーなし)	1-17